

5

JP-A-9-278954

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平9-278954

(43) 公開日 平成9年(1997)10月28日

(51) Int.Cl. <sup>6</sup>	識別記号	庁内整理番号	FI	技術表示箇所
C 0 8 L 23/10	L C D		C 0 8 L 23/10	L C D
	L C H			L C H
B 2 9 C 45/00			B 2 9 C 45/00	
C 0 8 K 3/34	K E F		C 0 8 K 3/34	K E F
7/08	K F T		7/08	K F T
審査請求 未請求 請求項の数 3 O L (全 11 頁) 最終頁に続く				

(21) 出願番号 特願平8-85496

(22) 出願日 平成8年(1996)4月8日

(71) 出願人 000002093

住友化学工業株式会社

大阪府大阪市中央区北浜4丁目5番33号

(71) 出願人 000003207

トヨタ自動車株式会社

愛知県豊田市トヨタ町1番地

(72) 発明者 平川 学

千葉県市原市姉崎海岸5の1 住友化学工業株式会社内

(72) 発明者 大川 健一

千葉県市原市姉崎海岸5の1 住友化学工業株式会社内

(74) 代理人 弁理士 久保山 隆 (外1名)

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 熱可塑性樹脂組成物およびその射出成形体

(57) 【要約】 (修正有)

【課題】 結晶性ポリプロピレンを主体として用い、衝撃強度および剛性度を満足し、かつ、従来用いられているエチレン-プロピレン共重合体ゴム組成物に比べハイフローかつ衝撃強度と剛性のバランスが良好である熱可塑性樹脂組成物、および射出成形体。

【解決手段】 特定の結晶性ポリプロピレン57~71重量%と、特定のエチレン-ブテン-1共重合体ゴム、特定のエチレン-プロピレン共重合体ゴム、特定のビニル芳香族化合物含有ゴムのうち少なくとも1種以上14~18重量%と、タルク15~25重量%と、必要に応じ繊維状マグネシウムオキシサルフェート0~10重量%を含有し、メルトフローインデックス(JIS-K-6758、230℃)が25~35g/10minであり、23℃における曲げ弾性率が20000kg/cm<sup>2</sup>以上である熱可塑性樹脂組成物および該熱可塑性樹脂組成物を射出成形方法により成形してなる射出成形体。

(2)

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 (1) 下記 (i) 又は (i i) から選ばれた結晶性ポリプロピレン (A) : 57~71重量%、

(i) 第1セグメントであるプロピレンホモポリマー部分のゲルパーミエーションクロマトグラフィー (GPC) 法による重量平均分子量 (Mw) / 数平均分子量 (Mn) 比であるQ値が3~5、 $^{13}\text{C}$ -NMRにより計算されるアイソタクチックペンタッド分率が0.98以上及び135℃テトラリン溶液の極限粘度が0.9~1.1dl/gであり、第2セグメントであるエチレン-プロピレンランダムコポリマー部分の135℃テトラリン溶液の極限粘度が4.5~5.5dl/g、エチレン/プロピレンの割合が25/75~35/65重量%比であり且つメルトフローインデックス (MI) が30g/10分以上である結晶性エチレン-プロピレンコポリマー

(i i) (i) の結晶性エチレン-プロピレンコポリマーとGPC法によるQ値が3~5、 $^{13}\text{C}$ -NMRにより計算されるアイソタクチックペンタッド分率が0.98以上及び135℃テトラリン溶液の極限粘度が0.9~1.1dl/gである結晶性プロピレンホモポリマーとの混合物

(2) 下記 (B)、(C) 又は (D) から選ばれた少なくとも1種以上のゴム成分: 14~18重量%、下記エチレン-ブテン-1共重合体ゴム (B) : 0~5重量% GPC法によるQ値が2.7以下、ブテン-1含量が15~20重量%、70℃キシレン溶液の極限粘度が1.1~2.1dl/gでありかつ100℃でのムーニー粘度 ( $\text{ML}_{1+4}^{100^\circ\text{C}}$ ) が7~90のエチレン-ブテン-1共重合体ゴム下記エチレン-プロピレン共重合体ゴム (C) : 0~5重量%

GPC法によるQ値が2.7以下、プロピレン含量が20~30重量%、70℃キシレン溶液の極限粘度が1.8~2.2dl/gでありかつ100℃でのムーニー粘度 ( $\text{ML}_{1+4}^{100^\circ\text{C}}$ ) が35~100のエチレン-プロピレン共重合体ゴム下記ビニル芳香族化合物含有ゴム (D) : 10~18重量%

オレフィン系共重合体ゴムもしくは共役ジエンゴムにビニル芳香族化合物が結合した、ビニル芳香族化合物含量が1~50重量%であり、かつキャピラリーフローテスターにより測定される230℃、剪断速度10  $\text{sec}^{-1}$ 、における熔融粘度が $10^4$ 以下であり、更に $^{13}\text{C}$ -NMRにより計算されるアイソタクチックペンタッド分率が0.98及び135℃テトラリン溶液の極限粘度が1.55dl/gである結晶性プロピレンホモポリマーに対しビニル芳香族化合物含有ゴム、10重量%添加したブレンドにおいて、ブレンド前後の結晶性プロピレンホモポリマー部に帰属するガラス転移点 ( $T_g$ ) の差 ( $\Delta T_g$ 、 $T_g$  シフト) が3℃未満であることを特徴とするビニル芳香族化合物含有ゴム

(3) 平均粒径が4  $\mu\text{m}$ 以下のタルク (E) : 15~25重量%

(4) 繊維径0.3~2  $\mu\text{m}$ 、平均繊維長が5~50  $\mu\text{m}$ である繊維状マグネシウムオキシサルフェート

(F) : 0~10重量%を含有する熱可塑性樹脂組成物であり、

次式1)~4)

$$1) (A) + (B) + (C) + (D) + (E) + (F) = 100$$

$$2) 0.20 \leq \{ [(A) \times (A)'] + (B) + (C) + (D) \} / 100 \leq 0.25$$

$$3) 0.1 \leq \{ (A) \times (A)' / [(A) \times (A)' + (B) + (C) + (D)] \}$$

$$4) 15 \leq [(E) + (F)] \leq 25$$

〔式中、(A)、(B)、(C)、(D)、(E) および (F) は各成分の重量%を示す。(A)' は結晶性ポリプロピレン (A) 中の第2セグメントの重量分率を示す。〕を満足し、かつ該熱可塑性樹脂組成物のメルトフローインデックス (JIS-K-6758、230℃) が25~35g/10minであり、23℃における曲げ弾性率が20000  $\text{kg/cm}^2$  以上であることを特徴とする熱可塑性樹脂組成物。

【請求項2】 請求項1記載の熱可塑性樹脂組成物を射出成形方法により成形してなることを特徴とする射出成形体。

【請求項3】 射出成形体が自動車内装用射出成形体であることを特徴とする請求項2記載の射出成形体。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は、物性の点においては剛性、耐衝撃性に優れ、射出成形加工性の点においては、短い成形サイクルを有し、フローマーク、ウェルドラインの発生や面歪みがないなど面品質に特長を有する熱可塑性樹脂組成物および射出成形方法により成形した寸法安定性の優れた射出成形体、特に自動車内装用材料に関するものである。さらに詳しくは、特定の結晶性ポリプロピレンを主体とし、物性の点においては剛性と耐衝撃性に優れ、また射出成形加工性の点においては成形サイクルが短かく面品質に優れた熱可塑性樹脂組成物、およびこれを射出成形方法により成形した寸法安定性の優れた射出成形体、特に自動車内装用射出成形体に関するものである。

【0002】

【従来の技術】 結晶性エチレン-プロピレンコポリマー/エチレン-プロピレン共重合体ゴム/タルクの組成物 (エチレン-プロピレン共重合体ゴム系組成物と略称する。) は、安価であること、成形性が良好であることなどの理由により、自動車内装用材料として幅広く用いられている。エチレン-プロピレン共重合体ゴム系樹脂組成物は通常射出成形加工方法により自動車内装用材料に

(3)

成形される。その射出成形加工性に関して第1に、生産性を上げるために、本組成物の成形サイクルが短縮されること、第2は本組成物が射出成形によりフローマークおよびウェルドラインの発生がなくかつ面歪みのない優れた面品質を有する内装用成形品を与えること等が要求されている。しかし、従来のエチレン-プロピレン共重合体ゴム系組成物は、単純にその流動性を上げると射出成形において面品質は改良されるが、内装用材料として要求される衝撃強度が満足されず、充填時間は短縮されるものの可塑性時間が長くなるため成形サイクルタイムは、結果的に短縮されないという問題点を有している。

【0003】

【発明が解決しようとする課題】かかる状況において本発明は、結晶性ポリプロピレンを主体として用い、物性の点においては内装用材料として要求される衝撃強度および剛性を満足し、かつ、従来用いられているエチレン-プロピレン共重合体ゴム組成物に比べハイフローかつ衝撃強度と剛性のバランスが良好であり、射出成形加工性の点においては、成形サイクルが短かく、かつ面品質の良好である熱可塑性樹脂組成物、さらにその組成物を用いた射出成形体、特に自動車内装用射出成形体を提供することを目的とする。

【0004】

【課題を解決するための手段】本発明は、結晶性ポリプロピレン(A)、エチレン-ブテン-1共重合体ゴム(B)、エチレン-プロピレン共重合体ゴム(C)、ビニル芳香族化合物含有ゴム(D)(上記(B)、

(C)、(D)のうち少なくとも1種以上を用いる。)タルク(E)、及び、繊維状マグネシウムオキシサルフェート(E)を含有する熱可塑性樹脂組成物および該熱可塑性樹脂組成物を射出成形方法により成形してなる射出成形体に係るものである。即ち、本発明は、

(1) 下記(i)又は(ii)から選ばれた結晶性ポリプロピレン(A): 57~71重量%、

(i) 第1セグメントであるプロピレンホモポリマー部分のゲルパーミエーションクロマトグラフィー(GPC)法による重量平均分子量(Mw)/数平均分子量(Mn)比であるQ値が3~5、 $^{13}\text{C}$ -NMRにより計算されるアイソタクチックペンタッド分率が0.98以上及び135℃テトラリン溶液の極限粘度が0.9~1.1dl/gであり、第2セグメントであるエチレン-プロピレンランダムコポリマー部分の135℃テトラリン溶液の極限粘度が4.5~5.5dl/g、エチレン/プロピレンの割合が25/75~35/65重量%比である結晶性エチレン-プロピレンコポリマー

(ii) (i)の結晶性エチレン-プロピレンブロックコポリマーとGPC法によるQ値が3~5、 $^{13}\text{C}$ -NMRにより計算されるアイソタクチックペンタッド分率が0.98以上及び135℃テトラリン溶液の極限粘度が0.9~1.1dl/gである結晶性プロピレンホモポリマーとの混合物

リマーとの混合物

(2) 下記(B)、(C)又は(D)から選ばれた少なくとも1種以上のゴム成分: 14~18重量%、下記エチレン-ブテン-1共重合体ゴム(B): 0~5重量%、GPC法によるQ値が2.7以下、ブテン-1含量が15~20重量%、70℃キシレン溶液の極限粘度が1.1~2.1dl/gでありかつ100℃でのムーニー粘度( $\text{ML}_{1+4}$  100℃)が7~90のエチレン-ブテン-1共重合体ゴム下記、エチレン-プロピレン共重合体ゴム(C): 0~5重量%、GPC法によるQ値が2.7以下、プロピレン含量が20~30重量%、70℃キシレン溶液の極限粘度が1.8~2.2dl/gでありかつ100℃でのムーニー粘度( $\text{ML}_{1+4}$  100℃)が35~100のエチレン-プロピレン共重合体ゴム

下記ビニル芳香族化合物含有ゴム(D): 10~18重量%、オレフィン系共重合体ゴムもしくは共役ジエンゴムにビニル芳香族化合物が結合した、ビニル芳香族化合物含量が1~50重量%であり、かつキャピラリーフローテスターにより測定される230℃、剪断速度10  $\text{sec}^{-1}$ 、における熔融粘度が $10^4$ 以下であり、更に $^{13}\text{C}$ -NMRにより計算されるアイソタクチックペンタッド分率が0.98及び135℃テトラリン溶液の極限粘度が1.55dl/gである結晶性プロピレンホモポリマーに対しビニル芳香族化合物含有ゴム、10重量%添加したブレンドにおいて、ブレンド前後の結晶性プロピレンホモポリマー部に帰属するガラス転移点( $T_g$ )の差( $\Delta T_g$ 、 $T_g$ シフト)が3℃未満である事の特徴とするビニル芳香族化合物含有ゴム、

(3) 平均粒径が4  $\mu\text{m}$ 以下のタルク(E): 15~25重量%、

(4) 繊維径0.3~2  $\mu\text{m}$ 、平均繊維長が5~50  $\mu\text{m}$ である繊維状マグネシウムオキシサルフェート

(F): 0~10重量%を含有する熱可塑性樹脂組成物であり、

次式1)~4)

1)  $(A) + (B) + (C) + (D) + (E) + (F) = 100$

2)  $0.20 \leq \{ [(A) \times (A)'] + (B) + (C) + (D) \} / 100 \leq 0.25$

3)  $0.1 \leq \{ (A) \times (A)' / [(A) \times (A)' + (B) + (C) + (D)] \}$

4)  $15 \leq [(E) + (F)] \leq 25$

(式中、(A)、(B)、(C)、(D)、(E)および(F)は各成分の重量%を示す。(A)'は結晶性ポリプロピレン(A)中の第2セグメントの重量分率を示す。)を満足し、かつ該熱可塑性樹脂組成物のメルトフローインデックス(JIS-K-6758、230℃)が25~35 g/10minであり、23℃における曲げ弾性率が20000  $\text{kg/cm}^2$ 以上である熱可塑性

(4)

樹脂組成物およびかかる熱可塑性樹脂組成物から得られる射出成形体、特に自動車内装用成形体に係るものである。以下、本発明について詳細に説明する。

【0005】

【発明の実施の形態】本発明において結晶性ポリプロピレン(A)とは、第1セグメントとして結晶性プロピレンホモポリマー部分、第2セグメントとしてエチレン-プロピレンランダムコポリマー部分を有する結晶性エチレン-プロピレンコポリマー(i)またはかかる結晶性エチレン-プロピレンコポリマーと結晶性プロピレンホモポリマーの混合物(ii)を言う。

【0006】ここで、結晶性ポリプロピレン(A)が、第1セグメントとして結晶性プロピレンホモポリマー部分、第2セグメントとしてエチレン-プロピレンランダムコポリマー部分を有する結晶性エチレン-プロピレンコポリマー(i)の場合に要求される物性値、組成等は次の通りである。即ち、結晶性エチレン-プロピレンコポリマー(i)において、第1セグメントであるプロピレンホモポリマー部分のゲルパーミエーションクロマトグラフィー(GPC)法による分子量分布を表わす重量平均分子量(Mw)/数平均分子量(Mn)比であるQ値は3~5、好ましくは3.5~4.5である。Q値が3未満の場合には流動性が悪化し、Q値が5をこえると射出成形加工時の成形サイクルと面品質の関係において好ましい結果が得られない。また $^{13}\text{C}$ -NMRにより計算されるアイソタクチックペンタッド分率は0.98、好ましくは0.985以上である。0.98未満では目的の剛性、耐熱性等を満足することが難しい。またプロピレンホモポリマー部分の135℃テトラリン溶液の極限粘度は0.9~1.1dl/gである。1.1dl/gをこえると組成物のメルトフローレートが低く、流動性が悪化し、充填時間が長くなるため成形サイクルが長くなるとともに、良好な面品質が得られない。また0.9dl/g未満では物性の点において引張り伸び、衝撃強度が低く、また射出成形性の点において良好な面品質が得られるものの可塑化時間が長くなるため成形サイクルが長くなり好ましい結果が得られない。

【0007】第2セグメントであるエチレン-プロピレンランダムコポリマー部分のエチレン含量( $\text{C}_2'$ )<sub>EP</sub>は、好ましくは25~35重量%、さらに好ましくは27~32重量%である。25重量%未満または35重量%をこえると、組成物の耐衝撃性に関して好ましい結果が得られない。またエチレン-プロピレンランダムコポリマー部分の極限粘度 $[\eta]_{\text{EP}}$ は好ましくは4.5~5.5dl/g、さらに好ましくは4.8~5.3dl/gである。4.5dl/g未満では射出成形加工時にフローマークが発生し、5.5dl/gをこえるとブツ部が発生し、面品質の点において好ましい結果が得られない。

【0008】結晶性ポリプロピレン(A)が、上記結晶

性エチレン-プロピレンコポリマー(i)と結晶性プロピレンホモポリマーとの混合物(ii)の場合に要求される結晶性プロピレンホモポリマーの物性値、組成等は次の通りである。即ち、上記結晶性エチレン-プロピレンコポリマー(i)と同じく、(GPC)法による分子量分布を表わす重量平均分子量(Mw)/数平均分子量(Mn)比であるQ値は3~5であり、 $^{13}\text{C}$ -NMRにより計算されるアイソタクチックペンタッド分率は0.98以上である。またプロピレンホモポリマー部分の135℃テトラリン溶液の極限粘度は0.9~1.1dl/gである。

【0009】次に、上記諸物性の測定方法について説明する。アイソタクチック・ペンタッド分率とは、A. ZambelliらによってMacromolecules, 6, 925(1973)に発表されている方法、すなわち $^{13}\text{C}$ -NMRを使用して測定される結晶性ポリプロピレン分子鎖中のペンタッド単位でのアイソタクチック連鎖、換言すればプロピレンモノマー単位が5個連続してメソ結合した連鎖の中心にあるプロピレンモノマー単位の分率である。ただし、NMR吸収ピークの帰属に関しては、その後発刊されたMacromolecules, 8, 687(1975)に基づいて行うものである。

【0010】また、エチレン-プロピレンランダムコポリマー部分の全体のブロックコポリマーに対する重量比率Xは、結晶性プロピレンホモポリマー部分と全体のブロックコポリマーの各々の結晶融解熱量を測定することにより次式から計算で求めることができる。

$$X = 1 - (\Delta H_f)_T / (\Delta H_f)_p$$

( $\Delta H_f$ )<sub>T</sub> : 全体のブロックコポリマーの融解熱量 (cal/g)

( $\Delta H_f$ )<sub>p</sub> : 結晶性プロピレンホモポリマー部分の融解熱量 (cal/g)

エチレン-プロピレンランダムコポリマー部分のエチレン含量は、赤外線吸収スペクトル法により全体のブロックコポリマー中のエチレン含量を重量%で測定し次式から計算で求めることができる。

$$(\text{C}_2')_{\text{EP}} = (\text{C}_2')_T / X$$

( $\text{C}_2'$ )<sub>T</sub> : 全体のブロックコポリマーのエチレン含量 (重量%)

( $\text{C}_2'$ )<sub>EP</sub> : エチレン-プロピレンランダムコポリマー部分のエチレン含量 (重量%)

【0011】さらに、エチレン-プロピレンランダムコポリマー部分の135℃テトラリン溶液中での極限粘度 $[\eta]_{\text{EP}}$ は、結晶性ホモポリマー部分と全体のブロックコポリマーの各々の極限粘度を測定することにより次式から計算で求めることができる。

$$[\eta]_{\text{EP}} = [\eta]_T / X - (1/X - 1) [\eta]_p$$

$[\eta]_p$  : 結晶性プロピレンホモポリマー部分の極限粘度 (dl/g)

(5)

$[\eta]_T$  : 全体のブロックコポリマーの極限粘度 (dl/g)

【0012】耐衝撃性が特に要求される用途に用いられる場合、結晶性ポリプロピレンは第1工程で重合された第1セグメントである結晶性ポリプロピレンホモポリマー部分と第2工程で重合された第2セグメントであるエチレン-プロピレンランダムコポリマー部分からなる結晶性エチレン-プロピレンコポリマー(i)を用いることが好ましい。該コポリマーはスラリー重合法および気相重合法等によって製造が可能である。特に高い耐衝撃性が要求される用途に用いられる場合、第2セグメント量を多くすることが必要であり気相重合法によって好適に製造される。該気相重合法による高耐衝撃性ポリプロピレンは、例えば、特開昭61-287917号公報に例示の方法で製造することが可能である。スラリー重合法では第2セグメント量は10~30重量%、気相重合法では10~70重量%の範囲で好適に製造される。気相重合法において更に、第2セグメント量の多い結晶性エチレン-プロピレンブロックコポリマーは特開平1-98604号に例示の方法で製造が可能であり、超高耐衝撃性の要求される用途に好適に用いられる。

【0013】本発明において用いられるエチレン-プロピレンコポリマー(i)は、マグネシウム、チタン、ハロゲンおよびアルミニウム化合物を必須成分として含有する固体触媒系の存在下にモノマーを二段階で反応させて得られるが、触媒系は(a)三価のチタン化合物含有固体触媒成分(三塩化チタンとマグネシウムとの複合体)、(b)有機アルミニウム化合物、(c)電子供与性化合物からなる触媒系が好ましい。

【0014】この触媒系の製造方法は、例えば、特開昭61-218606号公報、特開平1-319508等に詳しく記載されている。即ち、(a)Si-O結合を有するケイ素化合物およびエステル化合物の共存下に一般式 $Ti(OR^1)_nX_{4-n}$ ( $R^1$ は炭素数1~20の炭化水素基、Xはハロゲン原子、nは $0 < n \leq 4$ の正数)で表わされるチタン化合物を、有機マグネシウム化合物で還元して得られる固体生成物を、エステル化合物とエーテル化合物と四塩化チタンとで処理して得られる三価のチタン化合物含有固体触媒成分、(b)有機アルミニウム化合物、および(c)電子供与性化合物よりなる触媒系である。

【0015】上記固体触媒成分(a)の合成に用いられる、チタン化合物は、上記一般式で表わされるものであるが、 $R^1$ は炭素数2~18のアルキル基および炭素数6~18のアリール基が好ましい。Xで表されるハロゲン原子としては、塩素、臭素、ヨウ素が例示でき、この中で、特に塩素が好ましい。上記一般式で表されるチタン化合物のnの値としては、 $0 < n \leq 4$ 、好ましくは、 $2 \leq n \leq 4$ 、特に好ましくは、 $n = 4$ である。

【0016】上記固体触媒成分(a)の合成に用いられ

る、Si-O結合を有する有機ケイ素化合物としては、下記の一般式 $Si(OR^2)_mR^{3-4-m}R^4(R^5SiO)_pSiR^6_3$ または $(R^7_2SiO)_q$ ( $R^2$ は炭素数1~20の炭化水素基、 $R^3$ 、 $R^4$ 、 $R^5$ 、 $R^6$ 、および $R^7$ は炭素数が1~20の炭化水素基又は水素原子、mは $0 < m \leq 4$ の正数、pは1~1000の整数、qは2~1000の整数である。)で表されるものである。有機ケイ素化合物の具体例として、テトラメトキシシラン、ジメチルジメトキシシラン、ジエトキシジエチルシラン、ジエトキシジフェニルシラン、トリエトキシフェニルシラン、シクロヘキシル・エチルジメトキシシラン、フェニルトリメトキシシラン等が例示され、これらの有機ケイ素化合物のうち好ましいものは、一般式 $Si(OR^2)_mR^{3-4-m}$ で表されるアルコキシシラン化合物であり、好ましくはこの式中、 $1 \leq m \leq 4$ であり、特に $m = 4$ のテトラアルコキシシラン化合物が好ましい。

【0017】上記固体触媒成分(a)の合成に用いられる、有機マグネシウム化合物としては、マグネシウム-炭素結合を含有する任意の型の有機マグネシウム化合物が使用できる。特に一般式 $R^8MgX$ ( $R^8$ は炭素数1~20の炭化水素基、Xはハロゲン)で表わされるグリニヤール化合物及び一般式 $R^9R^{10}Mg$ ( $R^9$ 、 $R^{10}$ は炭素数1~20の炭化水素基)で表わされるジアルキルマグネシウム化合物またはジアリールマグネシウム化合物が好適に使用される。ここで $R^9$ 、 $R^{10}$ は同一でも異なってもよい。

【0018】上記固体触媒成分(a)の合成に用いられる、エステル化合物としては、脂肪族カルボン酸エステル、オレフィンカルボン酸エステル、脂環式カルボン酸エステル、芳香族カルボン酸エステル等のモノ及び多価のカルボン酸エステルが挙げられる。これらのエステル化合物のうち、メタクリル酸エステル、マレイン酸エステル等のオレフィンカルボン酸エステル及びフタル酸エステルが好ましく特にフタル酸のジエステルが好ましい。

【0019】また、エーテル化合物としては、ジエチルエーテル、ジ-n-プロピルエーテル、ジイソプロピルエーテル、ジブチルエーテル、ジアミルエーテル、メチル-n-ブチルエーテル等のジアルキルエーテルが好ましく、特にジ-n-ブチルエーテル、ジイソアミルエーテルが好ましい。

【0020】上記固体触媒成分(a)は、有機ケイ素化合物およびエステル化合物の存在下、チタン化合物を有機マグネシウム化合物で還元して得られる固体生成物を、エステル化合物で処理したのち、エーテル化合物と四塩化チタンの混合物で処理する、またはエーテル化合物と四塩化チタンとエステル化合物の混合物で処理して合成される。これらの合成反応は、全て窒素、アルゴン等の不活性気体雰囲気下で行われる。還元反応温度は、 $-50^\circ\text{C} \sim 70^\circ\text{C}$ 、好ましくは $-30 \sim 50^\circ\text{C}$ 、特に好

(6)

ましくは、 $-25^{\circ}\text{C}\sim 35^{\circ}\text{C}$ の温度範囲である。

【0021】上記(b)成分の有機アルミニウム化合物は、少なくとも分子内に一個のアルミ-炭素結合を有し、一般式 $\text{R}^{11}\text{rAlY}_{3-\text{r}}$ 、 $\text{R}^{12}\text{R}^{13}\text{Al}-\text{O}-\text{AlR}^{14}\text{R}^{15}$ ( $\text{R}^{11}\sim\text{R}^{15}$ は炭素数が1~20個の炭化水素基、Yハロゲン、水素またはアルコキシ基を表し、 $\text{r}$ は $2\leq\text{r}\leq 3$ で表される正数である)で表されるものである。有機アルミニウム化合物の具体例としては、トリエチルアルミニウム、トリイソブチルアルミニウム、トリヘキシルアルミニウム等のトリアルキルアルミニウム、ジエチルアルミニウムハライド、ジイソブチルアルミニウムハライド等のジアルキルアルミニウムハライド、トリエチルアルミニウムとジアルキルアルミニウムハライドの混合物、テトラエチルジアルモキサン、テトラブチルジアルモキサン等のアルキルアルモキサンが例示される。

【0022】これらの有機アルミニウム化合物のうち、トリアルキルアルミニウム、トリアルキルアルミニウムとジエチルアルミニウムクロライドの混合物およびテトラエチルジアルモキサンが好ましい。有機アルミニウム化合物の使用量は、固体触媒成分(a)中のチタン原子1モル当たり0.5~1000モルのごとく広範囲に選ぶことができるが、特に1~600モルの範囲が好ましい。

【0023】上記(c)成分の電子供与性化合物としては、アルコール類、フェノール類、ケトン類、アルデヒド類、カルボン酸類、有機酸または無機酸のエステル類、エーテル類、酸アミド類、酸無水物類等の含酸素電子供与体、アンモニア類、ニトリル類、イソシアネート類等の含窒素電子供与体等を挙げることができる。これらの電子供与体のうち好ましくは無機酸のエステル類およびエーテル類が用いられる。

【0024】(b)成分のアルミニウム化合物と、

(a)成分のチタン化合物とマグネシウム化合物の複合体との比率は $3/1\sim 20/1$ の範囲で選ぶことができる。またSi-O結合を有するシラン化合物と、チタン化合物とマグネシウム化合物の複合体との比率は $1/10\sim 1/2$ (モル/モル)の範囲で選ぶことができる。

【0025】本発明におけるエチレン-ブテン-1共重合体ゴム(B)は、エチレンとブテン-1のランダム共重合体ゴムのことであり、市販されている。エチレン-ブテン-1共重合体ゴム中のブテン-1含量は15~20重量%、好ましくは16~19重量%、さらに好ましくは17~18重量%である。15重量%未満では、耐衝撃性に関して好ましい結果が得られず、20重量%を超えると剛性に関して好ましい結果が得られない。エチレン-ブテン-1共重合体ゴムのGPC法によるQ値は2.7以下、好ましくは2.5以下、 $70^{\circ}\text{C}$ キシレン溶液での極限粘度は $1.1\sim 2.1\text{dl/g}$ かつ $100^{\circ}\text{C}$ でムーニー粘度( $\text{ML}_{1+4}\ 100^{\circ}\text{C}$ )が7~90であ

り、好ましくは各々 $1.2\sim 2.0\text{dl/g}$ かつ $10\sim 80$ である。Q値が2.7をこえると剛性が低くなり好ましくない。 $70^{\circ}\text{C}$ キシレン溶液での極限粘度が $1.1\text{dl/g}$ 未満でかつ $100^{\circ}\text{C}$ でのムーニー粘度( $\text{ML}_{1+4}\ 100^{\circ}\text{C}$ )が7未満では剛性および衝撃強度に関して好ましい結果が得られず、また各々 $2.0\text{dl/g}$ あるいは90を超えると結晶性ポリプロピレン(A)との分散が悪く衝撃強度に関して好ましい結果が得られない。

【0026】本発明におけるエチレン-プロピレン共重合体ゴム(C)は、エチレンとプロピレンのランダム共重合体ゴムもしくはエチレン-プロピレン-非共役ジエン共重合体ゴムのことであり、市販されている。エチレン-プロピレン共重合体ゴム中のプロピレン含量は20~30重量%、好ましくは22~28重量%である。20重量%未満では衝撃強度に関して好ましい結果が得られず30重量%をこえると剛性に関して好ましい結果が得られない。共重合体ゴム中の非共役ジエン含量を7重量%以下とする事が好ましい。非共役ジエン含量が7重量%を超えると、混練の際ゲル化を起こす為、好ましくない。エチレン-プロピレン共重合体ゴムのGPC法によるQ値は2.7以下、好ましくは2.5以下、 $70^{\circ}\text{C}$ キシレン溶液での極限粘度は $1.8\sim 2.2\text{dl/g}$ 、かつ $100^{\circ}\text{C}$ でのムーニー粘度( $\text{ML}_{1+4}\ 100^{\circ}\text{C}$ )が35~100であり、好ましくは各々 $1.9\sim 2.1\text{dl/g}$ 、50~90である。Q値が2.7をこえると剛性が低くなり好ましくない。 $70^{\circ}\text{C}$ キシレン溶液での極限粘度が $1.8\text{dl/g}$ 未満で、かつ $100^{\circ}\text{C}$ でのムーニー粘度( $\text{ML}_{1+4}\ 100^{\circ}\text{C}$ )が35未満では剛性および衝撃強度に関して好ましい結果が得られず、また各々 $2.2\text{dl/g}$ 、100をこえると結晶性ポリプロピレン(A)との分散が悪く衝撃強度に関して好ましい結果が得られない。

【0027】本発明におけるビニル芳香族化合物含有ゴム(D)は、オレフィン系共重合体ゴムもしくは共役ジエンゴムに対し、重合、反応等によりビニル芳香族化合物が結合しているゴム、例えば、スチレン-ブタジエン系ゴム(SBR)、スチレン-ブタジエン-スチレン系ゴム(SBS)、スチレン-イソプレン-スチレン系ゴム(SIS)等のブロック、ランダムコポリマーまたはこれらのゴム成分を水添したブロック、ランダムコポリマー等を挙げることができる。また、エチレン-プロピレン-非共役ジエン系ゴム(EPDM)にスチレン等のビニル芳香族化合物を反応させたゴムもまた好適に使用できる。ビニル芳香族化合物含有ゴム中のビニル芳香族化合物含量は1~50重量%、好ましくは5~40重量%、さらに好ましくは10~30重量%であり、かつキャピラリーフローテスターにより測定される $230^{\circ}\text{C}$ 、剪断速度 $10\text{sec}^{-1}$ における熔融粘度が $10^4$ 以下であり、更に $^{13}\text{C}$ -NMRにより計算されるアイソタク

(7)

チックペンタッド分率が 0.98 及び 1.35℃ テトラリン溶液の極限粘度が 1.55 dl/g である結晶性プロピレンホモポリマーに対しビニル芳香族化合物含有ゴム、10 重量% 添加したブレンドにおいて、ブレンド前後の結晶性プロピレンホモポリマー部に帰属するガラス転移点 ( $T_g$ ) の差 ( $\Delta T_g$ 、 $T_g$  シフト) が 3℃ 未満である事を特徴とするビニル芳香族化合物含有ゴムである。 $T_g$  シフトが 3℃ 以上では組成物中のポリプロピレンホモポリマー部に相溶し剛性を低下させ、熔融粘度が 10<sup>4</sup> より高いと組成物の流動性が低下するばかりでなく分散不良となり、衝撃強度まで低下させる。

【0028】本発明において、最終組成物中のエチレン-ブテン-1 共重合体ゴム (B)、エチレン-プロピレン共重合体ゴム (C) およびビニル芳香族化合物含有ゴム (D) は、少なくとも 1 種以上用いる必要がある。最終組成物に対する上記 (B) ~ (D) の合計含有量としては、1.8 ~ 2.3 重量% である。さらに (A) の結晶性エチレン-プロピレンブロックコポリマーの第 2 セグメント量を含めた場合  $[(A) \times (A)' + (B) + (D)]$  は、次の式を満足することが必要である。

$$1) (A) + (B) + (C) + (D) + (E) + (F) = 100$$

$$2) 0.20 \leq \{ [(A) \times (A)' + (B) + (C) + (D)] / 100 \} \leq 0.253 \quad 0.1 \leq \{ (A) \times (A)' / [(A) \times (A)' + (B) + (C) + (D)] \}$$

これらの下限値未満では衝撃強度について好ましい結果が得られず、またこれらの上限値を超えると組成物の流動性が低下する。

【0029】本発明で使用されるタルク (E) の平均粒子径は、4  $\mu$ m 以下で、好ましくは 3  $\mu$ m 以下である。4  $\mu$ m より大きいものは衝撃強度の低下が大きく、光沢等の外観も悪くなる。タルクは無処理のまま使用しても良いがポリプロピレン系樹脂との界面接着性を向上させ、また分散性を向上させる目的で通常知られている各種シランカップリング剤、チタンカップリング剤、高級脂肪酸、高級脂肪酸エステル、高級脂肪酸アミド、高級脂肪酸塩類あるいは他の界面活性剤で表面を処理したものを使用することができる。ここでタルクの平均粒子径とは遠心沈降式粒度分布測定装置を用いて水、アルコール等の分散媒中に懸濁させて測定した篩下法の積分分布曲線から求めた 50% 相当粒子径 D<sub>50</sub> のことを意味する。

【0030】本発明で使用される繊維状マグネシウムオキシサルフェート (F) は、平均繊維長は 5 ~ 50  $\mu$ m、好ましくは 10 ~ 30  $\mu$ m であり、平均繊維径は 0.5 ~ 1.0  $\mu$ m である。最終組成物の具体的な物性値として、メルトフローインデックス (JIS-K-6758、230℃、2.16 kg 荷重) が 25 ~ 35 g/10 min であり、剛性度は 23℃ の曲げ弾性率が 2

0000 kg/cm<sup>2</sup> 以上であることが必要である。更には、衝撃強度は 23℃ でのアイゾット衝撃強度 (ノッチ付) が 25 kg·cm/cm 以上で、かつ脆化温度が 0℃ 以下であることが望ましい。上記 (E) および

$$(F) \text{ 成分の含有割合は式 } 4) \quad 15 \leq [(E) +$$

(F)]  $\leq 25$  を満足する必要がある。これらの範囲外では熱可塑性樹脂組成物の耐熱性が劣り、また上限を越えるとその流動性、成形品の外観が悪くなるので好ましくない。本発明の目的とする熱可塑性樹脂組成物は、使用する各成分の構造を上記の様に特定化し、各成分の配合割合と特定範囲に限定して初めて得ることができる。

【0031】本発明の組成物は、一軸押出機、二軸押出機、バンバリーミキサー、熱ロールなどの混練機を用いて製造することができる。各成分の混合は同時に行なってもよく、また分割して行なってもよい。分割添加の方法として、結晶性ポリプロピレンとタルクを混練した後、エチレン-ブテン-1 共重合体ゴム、エチレン-プロピレン共重合体ゴムおよびビニル芳香族化合物含有ゴム (以下あわせてゴムと略称する。) を添加する方法や、予め結晶性ポリプロピレンにタルクを高濃度に混練してマスターバッチとし、それを別途結晶性ポリプロピレンやゴム等で希釈しながら混練する方法がある。さらに分割添加の第 2 の方法として、結晶性ポリプロピレンとゴムを混練した後、タルクを添加し混練する方法や、予め結晶性ポリプロピレンにゴムを高濃度に混練してマスターバッチとし、それに結晶性ポリプロピレン、タルクを添加し混練する方法がある。分割添加の第 3 の方法として、予め結晶性ポリプロピレンとタルク、結晶性ポリプロピレンとゴムをそれぞれ混練しておき、最後にそれらを合わせて混練する方法である。混練に必要な温度は 170 ~ 250℃ であり、時間は 1 ~ 20 分である。さらに、これらの混練機においてこれらの基本成分以外に、酸化防止剤、紫外線吸収剤、滑剤、顔料、帯電防止剤、銅害防止剤、難燃剤、中和剤、発泡剤、可塑剤、造核剤、気泡防止剤、架橋剤等の添加剤を配合することができる。尚、本発明の熱可塑性樹脂組成物は、一般の採用されている射出成形方法により射出成形体とすることができる。特に、ドアトリムやピラー、インストルメントパネル等の自動車用射出成形体として好適に使用される。

【0032】

【実施例】以下実施例により本発明を説明するが、これらは単なる例示であり、本発明は要旨を逸脱しない限りこれら実施例に限定されるものではない。次に実施例における物性値の測定法を以下に示す。

(1) メルトフローインデックス

JIS-K-6758 に規定された方法による。測定温度は 230℃ であり荷重はことわりのない限り 2.16 kg で測定する。

(2) 曲げ試験

(8)

JIS-K-7203に規定された方法による。射出成形により成形された試験片を用いる。試験片の厚みは6.4mmであり、スパン長さ100mm、荷重速度2.0mm/minの条件で曲げ弾性率および曲げ強度を評価する。測定温度はことわりのない限り23℃である。

### (3) アイゾット衝撃強度

JIS-K-7110に規定された方法による。射出成形により成形された試験片を用いる。試験片の厚みは6.4mmであり、成形の後にノッチ加工されたノッチ付きの衝撃強度を評価する。測定温度はことわりのない限り23℃である。それ以外の温度の場合は所定温度の恒温槽で2時間状態調整をした後に測定を行う。

### 【0033】(4) 脆化温度 (B. P)

JIS-K-6758に規定された方法による。射出成形により成形された25×150×2mmの平板から所定の6.3×38×2mmの試験片を打抜き抜き、所定の方法で評価を行う。

### (5) 加熱変形温度 (HDT)

JIS-K-7207に規定された方法による。ファイバーストレスは18.6kg/cm<sup>2</sup>で測定する。

### (6) ムーニー粘度

JIS-K-6300に規定された方法により測定した。測定温度は100℃である。

(7) エチレン含量、プロピレン含量、ブテン-1含量  
プレスシートを作製し測定した赤外吸収スペクトルに現れるエチレン含量またはプロピレン含量についてはメチル基(-CH<sub>3</sub>)およびメチレン基(-CH<sub>2</sub>-)の特性吸収の吸光度を用いて、ブテン-1含量についてはエチル基の特性吸収の吸光度を用いて、検量線法により求めた。

### 【0034】(8) 極限粘度

ウベローデ型粘度計を用いて濃度0.1、0.2および0.5g/dlの3点について還元粘度を測定した。極限粘度は、「高分子溶液、高分子実験学11」(1982年共立出版株式会社刊)第491頁に記載の計算方法すなわち、還元粘度を濃度に対しプロットし、濃度をゼロに外挿する外挿法によって求めた。結晶性ポリプロピレンについては、溶媒としてテトラリンを溶媒として用い、温度135℃で評価した。エチレン-ブテン-1共重合体ゴムおよびエチレン-プロピレン共重合体ゴムについては、溶媒としてキシレンを用い、温度70℃で評価した。

### (9) 分子量分布

ゲルパーミエーションクロマトグラフィー(GPC)により測定し、以下に示す条件で行った。

#### (a) 結晶性ポリプロピレン

GPC: Waters社製 150C型

カラム: 昭和電工社製 Shodex 80 MA 2本

サンプル量: 300μl (ポリマー濃度0.2wt%)

流量: 1ml/min

温度: 135℃

溶媒: o-ジクロロベンゼン

東ソー社製の標準ポリスチレンを用いて溶出体積と分子量の検量線を作成した。検量線を用いて検体のポリスチレン換算の重量平均分子量、数平均分子量を求め分子量分布の尺度としてQ値=重量平均分子量/数平均分子量を求めた。

(b) エチレン-ブテン-1共重合体ゴム、エチレン-プロピレン共重合体ゴム

GPC: Waters社製 150C型

カラム: 昭和電工社製 Shodex 80 MA 1本

サンプル量: 300μl (ポリマー濃度0.2wt%)

流量: 1ml/min

温度: 145℃

溶媒: o-ジクロロベンゼン

東ソー社製の標準ポリスチレンを用いて溶出体積と分子量の検量線を作成した。検量線を用いて検体のポリスチレン換算の重量平均分子量、数平均分子量を求め分子量分布の尺度としてQ値=重量平均分子量/数平均分子量を求めた。(10) ガラス転移点(Tg)及びTgシフト固体粘弾性測定装置により測定し、以下に示す条件で行った。

固体粘弾性測定装置: セイコー電子工業社製スペクトロメーターSD5600

周波数: 5Hz

測定温度: -150℃~80℃

ガラス転移点: 損失弾性率の温度分散測定から得られる吸収ピークより求めた。

Tgシフト: <sup>13</sup>C-NMRにより計算されるアイソタクチックペンタッド分率が0.98及び135℃テトラリン溶液の極限粘度が1.55dl/gである結晶性プロピレンホモポリマーに対し、各種ゴム10重量%添加後、小型熱ロールにより180℃で熔融混練ブレンドし、ブレンド前後の結晶性プロピレンホモポリマー部に帰属するガラス転移点(Tg)の差(ΔTg)を求めた。

#### (11) 溶融粘度

キャピラリーフローテスターにより側定し、以下に示す条件Rで行った。キャピラリーフローテスター: 東洋精機製作所製キャピログラフ1B

測定温度: 230℃

剪断速度: 10sec<sup>-1</sup>

オリフィスの長さ(L)と直径(D)の比率(L/D): 20

【0035】上記(2)、(3)、(4)および(5)の物性評価用試験片は、特にことわりのない限り次の射出成形条件下で作製した。組成物を熱風乾燥器で120



(9)

℃で2時間乾燥後、東芝機械製IS150E-V型射出成形機を用い成形温度220℃、金型冷却温度50℃、射出時間15sec、冷却時間30secで射出成形を行った。以下の組成物は特にことわりのない限り次のような条件で製造した。各成分の所定量を計量し、ヘンシェルミキサーおよびタンブラーで均一に予備混合した後、二軸混練押出機（日本製鋼所社製TEX44SS30BW-2V型）にて押出量50kg/hr、スクリュウ回転数350rpm、ベント吸引下で行った。スクリュウは三条タイプのローターとニーディングディスクを混練ゾーン2ヶ所、おのおの第1フィード口、第2フィード口の次のゾーンに配置して構成した。

【0036】実施例1～5、比較例1～4

表1に示す各種材料を表2に示す配合にて混練し、所定の条件で試験片を射出成形した。物性評価結果を表3に示す。本発明の実施例は比較例に比べ剛性、アイゾット衝撃強度、脆化温度などの物性においてバランスよく優れている。

【0037】実施例の結晶性エチレン-プロピレンブロックコポリマー（BC-1、BC-2）は、下記の方法にて製造した。

（固体触媒成分の製造）特開平1-319508号の実施例1の方法に準じて次の方法で合成した。

（1）固体生成物の合成

攪拌機、滴下ロートを備えた200リットルの反応容器をN<sub>2</sub>で置換した後、ヘキサン80リットル、テトラブトキシチタン2.23リットル（2.23kg、6.55モル）、フタル酸ジイソブチル0.75リットル

（0.78kg、2.8モル）およびテトラエトキシシラン22.1リットル（20.6kg、98.9モル）を投入し、均一溶液とした。次に、濃度2.1モル/リットルの有機マグネシウム化合物51リットルを反応容器内の温度を5℃に保ちながら、5時間かけてたじろたじろに滴下した。滴下終了後、室温でさらに1時間攪拌した後室温で固液分離し、トルエン70リットルで3回洗浄を繰り返した後、スラリー濃度を0.2kg/リットルになるようにトルエンを加えた。固体生成物スラリーの一部をサンプリングし、組成分析を行ったところ固体生成物中にはチタン原子が1.7重量%、フタル酸エステルが0.1重量%、エトキシ基が32.7重量%、ブトキシ基が3.5重量%含有されていた。

（2）エステル処理固体の合成

200リットルの反応容器をN<sub>2</sub>で置換した後、上記

（1）で得られた固体生成物を含むスラリーにフタル酸ジイソブチル13.26kg（47.6モル）を加え、95℃で30分反応を行った。反応後、固液分離し、トルエン70リットルで2回洗浄を行った。

（3）固体触媒成分の合成（活性化処理）

上記（2）での洗浄終了後、反応容器にトルエン、フタル酸ジイソブチル0.87kg（3.13モル）、ブチ

ルエーテル1.16kg（8.9モル）、および四塩化チタン30リットル（274モル）を加え、105℃で3時間反応を行った。反応終了後、同温度で固液分離した後、同温度でトルエン90リットルで2回洗浄を行った。次いで、トルエン、ブチルエーテル1.16kg（8.9モル）、および四塩化チタン15リットル（137モル）を加え、105℃で1時間反応を行った。反応終了後、同温度で固液分離した後、同温度でトルエン90リットルで3回洗浄を行ったのち、ヘキサン70リットルで3回洗浄し、さらに減圧乾燥して固体触媒成分11.4kgを得た。

【0038】（BC-1の製造）内容積5.5m<sup>3</sup>の攪拌機及びジャケット付きのSUS製反応器をプロピレンで十分置換したのち、n-ヘプタン2.5m<sup>3</sup>、トリエチルアルミニウム10モル及びシクロヘキシルエチルジメトキシシラン1.5モルを供給し、さらに内温を20～40℃、圧力をプロピレンで0.5kg/cm<sup>2</sup>Gに調整し、上記の固体触媒成分0.12kgを供給する。次いで、ジャケットに温水を通し該反応器の内温を75℃に昇温したのちプロピレン及び水素で反応圧力を8kg/cm<sup>2</sup>Gに昇圧し重合を開始した。反応温度75℃で反応圧力8kg/cm<sup>2</sup>Gを保つようにプロピレンを連続的に供給し、気相部の水素濃度を4.0%に保つように供給しながら結晶性ポリプロピレン部分（以下P部と省略する）の重合を継続した。プロピレン供給量の積算量が1080kgに達した時点でプロピレン及び水素の供給を停止し、反応器内の未反応モノマーを脱ガスし、反応器内圧力を0.5kg/cm<sup>2</sup>Gまで降圧すると共に、反応器内温度を60℃に調整した。P部のポリマーを約100gサンプリングし分析した結果、極限粘度[η]<sub>p</sub>は0.094dl/gであり、GPCにより求めた分子量の比M<sub>w</sub>/M<sub>n</sub>は4.1、20℃キシレン可溶分は0.85重量%であった。

【0039】引き続き、プロピレン及びエチレンにより反応圧力を3kg/cm<sup>2</sup>Gに昇圧しエチレン-プロピレン共重合部（以下EP部と省略する）の重合を開始し、反応温度60℃で反応圧力を3kg/cm<sup>2</sup>Gを保つようにプロピレン/エチレン=3/1（重量比）の混合ガスを連続的に供給し、気相部の水素濃度が0.01%に保たれるように調整しながらEP部の重合を継続した。プロピレン/エチレン混合ガスの供給積算量が188kgに達した時点でモノマーの供給を停止し、反応器内のポリマースラリーの全量を失活槽へ導きブチルアルコールで失活処理を行った後、該ポリマースラリーを遠心分離することにより固体ポリマーを回収し、ドライヤーにて乾燥して粉末状白色パウダー960kgを得た。得られたポリマー全体の極限粘度[η]<sub>T</sub>は1.52dl/gであり、エチレン含量は4.2重量%であった。又、P部とEP部の重合比は、結晶融解熱量の測定結果より計算し重量比で83.7/16.3であった。した

(10)

がってEP部におけるポリマー中のエチレン含量は26重量%であり、EP部の極限粘度 $[\eta]$ EPは4.5dl/gであった。

【0040】得られたエチレン-プロピレンブロック共重合体100重量部に、安定剤としてステアリン酸カルシウム0.15重量部、2,6-ジ-*t*-ブチル-4-ヒドロキシトルエン（商品名スミライザーBHT、住友化学工業（株）製）0.1重量部、テトラキス〔メチレン-3（3'，5'-*t*-ブチル-4-ヒドロキシフェニル）プロピオネート〕メタン（商品名イルガノックス1010、チバ・ガイギー社製）0.05重量部を添加して、連続二軸混練機を用いてペレット化したのち射出

成形によって試験片を作成して物性を測定した。評価結果を表3に示した。剛性、衝撃強度、及び流動性が良好であった。

【0041】（BC-2の製造）P部の $[\eta]$ pを所定の値とするためその重合時反応器内気相部の水素濃度を30%とし、EP部の $[\eta]$ EPおよびEP部のエチレン含量を所定の値とするためにその重合時気相部の水素濃度を0.25%、プロピレン/エチレンの混合ガスの重量比を1/3.5とした以外は、BC-1と同様に実施した。

【0042】

【表1】

	サンプル	P 部			E P 部		
		Q 値	$[\eta]$ P (dl/g)	147℃ 10分率	$[\eta]$ EP (dl/g)	含量1 (%)	含量2 (%)
ポリ プロ ピレン	BC-1	4.1	0.94	0.982	4.5	16.3	26
	BC-2	4.2	1.01	0.972	4.0	17.8	47
	PP-1	4.0	0.97	0.980	--	--	--
ゴ ム	サンプル	Q 値	MLI+4 100℃	$[\eta]$ (dl/g)	ゴ/ア 含量 (wt %)		
	EBR	2.0	14	1.6	17		
	EPR	2.1	36	1.7	22		
	サンプル	MI (g/10分)	スチレン含量 (wt %)	147℃-70℃ 測定 による粘度(poise)	Tgジフト (℃)		
	SEBS-1	8	13	$8.8 \times 10^3$	2.2		
	SEBS-2	--	29	$1.6 \times 10^4$	1.8		
	HSBR	8	10	$2.8 \times 10^4$	6.3		

BC : エチレン-プロピレンコポリマー

PP : プロピレンホモポリマー

EPR : エチレン-プロピレン共重合体ゴム

EBR : エチレン-ブテン-1共重合体ゴム

SEBS : スチレン-エチレン/ブテン-1-スチレンブロックコポリマー

HSBR : 水素スチレン-ブタジエンランダムコポリマー

P部 : BCのプロピレンホモポリマー部分

EP部 : BCのエチレン-プロピレンランダムコポリマー部分

含量1 : BCにおけるEP部の含量

含量2 : EP部におけるエチレン含量

【0043】

【表2】

	組 成 ( wt % )									
	BC-1	BC-2	PP-1	EBR	EPR	SEBS-1	SEBS-2	HSBR	TALC	WHISKER
実施例-1	49	--	18	4	--	10	--	--	19	--
実施例-2	49	--	18	--	4	10	--	--	19	--
実施例-3	49	--	18	--	--	14	--	--	19	--
実施例-4	49	--	18	2	--	12	--	--	14	5
比較例-1	--	47	20	4	--	10	--	--	19	--
比較例-2	49	--	18	--	4	--	10	--	19	--
比較例-3	49	--	18	--	4	--	--	10	19	--
比較例-4	49	--	18	10	--	4	--	--	19	--
比較例-5	49	--	18	--	10	4	--	--	19	--

TALC : タルク

WHISKER : 繊維状マグネシウムオキシサルフェート

(11)

【0044】

【表3】

	M I	曲げ弾性率	I Z O D		H D T	B. P.
			23℃	-30℃		
単 位	g/10分	kg/cm <sup>2</sup>	kgcm/cm		℃	℃
実施例-1	30	23200	30	3.6	77	-1
実施例-2	32	22800	27	3.4	76	-2
実施例-3	33	21800	35	3.8	75	-7
実施例-4	31	22700	34	3.7	78	-5
比較例-1	29	22200	19	3.6	76	-6
比較例-2	25	22500	17	3.5	77	-4
比較例-3	29	16700	24	2.1	66	-4
比較例-4	26	22300	18	3.4	76	+2
比較例-5	27	22000	17	2.9	75	+7

【0045】

【発明の効果】本発明による熱可塑性樹脂組成物は、流動性、剛性、衝撃強度、射出成形加工性に優れ、また成形品の外観、例えば、フローマーク、ウェルドラインおよび面歪み等に優れている。本発明により提供される熱可塑性樹脂組成物は通常の加工法、たとえば射出成形、

押出成形、プレス成形法によって容易に成形体、フィルム、シートなどに加工できる。中でも射出成形方法は、該熱可塑性樹脂組成物に良好な寸法安定性を付与するという意味で最も好ましい成形方法であり、特に車体との取付け精度、特に自動車内装材用途に好適に用いられる。

フロントページの続き

(51) Int. Cl. 6	識別記号	庁内整理番号	F I	技術表示箇所
C 0 8 K 13/04			C 0 8 K 13/04	
C 0 8 L 23/16	L C Y		C 0 8 L 23/16	L C Y
//(C 0 8 L 23/10				
23:16				
25:02)				
B 2 9 K 23:00				
B 2 9 L 31:58				
(72) 発明者 土居 照彦			(72) 発明者 三宅 裕一	
千葉県市原市姉崎海岸5の1 住友化学工業株式会社内			愛知県豊田市トヨタ町1番地 トヨタ自動車株式会社内	
(72) 発明者 久山 徹也			(72) 発明者 西尾 武純	
千葉県市原市姉崎海岸5の1 住友化学工業株式会社内			愛知県豊田市トヨタ町1番地 トヨタ自動車株式会社内	